

PAT-NO: JP411283817A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 11283817 A

TITLE: RARE EARTH BONDED MAGNET AND COMPOSITION
THEREOF

PUBN-DATE: October 15, 1999

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
YAMAGAMI, TOSHIAKI	N/A
YAMAZAKI, SOICHI	

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
SEIKO EPSON CORP	N/A

APPL-NO: JP10082261

APPL-DATE: March 27, 1998

INT-CL_(IPC): H01F001/08; C22C038/00 ; H01F001/053

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a rare earth bonded magnet which is provided with high heat resistance, superior size stability, high mechanical strength and superior magnetic characteristics.

SOLUTION: A rare earth bonded magnet is manufactured by compression molding by the use of a composition for a rare earth bonded magnet including a rare earth magnet powder, bonding resin, antioxidant and lubricant as needed. As the rare earth magnet powder, at least one kind of Sm-Co alloy, R-Fe-B alloy (where R is at least one kind of rare earth elements, including Y) and Sm-Fe-N alloy. The bonding resin is constituted of polybutylene terephthalate(PBT) or thermoplastic resin based on this.

(19)日本国特許庁（J P）

(12) 公 開 特 許 公 報（A）

(11)特許出願公開番号

特開平11-283817

(43)公開日 平成11年(1999)10月15日

(51)Int.Cl.⁶

識別記号

F I

H 0 1 F 1/08

H 0 1 F 1/08

A

C 2 2 C 38/00

3 0 3

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 1/04

H

審査請求 未請求 請求項の数22 O L （全 9 頁）

(21)出願番号

特願平10-82261

(22)出願日

平成10年(1998)3月27日

(71)出願人

000002369

セイコーエプソン株式会社

東京都新宿区西新宿2丁目4番1号

(72)発明者

山上 利昭

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ

ーエプソン株式会社内

(72)発明者

山▲ざき▼ 聡一

長野県諏訪市大和3丁目3番5号 セイコ

ーエプソン株式会社内

(74)代理人

弁理士 鈴木 喜三郎 (外2名)

(54)【発明の名称】 希土類ボンド磁石および希土類ボンド磁石用組成物

(57)【要約】

【課題】高耐熱性、寸法安定性に優れ、高機械的強度で、優れた磁気特性を持つ希土類ボンド磁石を提供すること。

【解決手段】本発明の希土類ボンド磁石は、希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤と、必要に応じ潤滑剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物を用い、圧縮成形により製造されたものである。希土類磁石粉末としては、例えばSm-Co系合金、R-Fe-B系合金（ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種）、Sm-Fe-N系合金のうちの1種以上が用いられる。結合樹脂は、ポリブチレンテレフタレート（PBT）またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成されている。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物を用い、圧縮成形により製造された希土類ボンド磁石であって、前記結合樹脂は、ポリブチレンテレフタレート（PBT）またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成されていることを特徴とする希土類ボンド磁石。

【請求項2】 希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤と、潤滑剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物を用い、圧縮成形により製造された希土類ボンド磁石であって、前記結合樹脂は、ポリブチレンテレフタレート（PBT）またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成されていることを特徴とする希土類ボンド磁石。

【請求項3】 前記潤滑剤は、ステアリン酸またはその金属塩である請求項2に記載の希土類ボンド磁石。

【請求項4】 前記酸化防止剤は、キレート化合物を生成するキレート化剤である請求項1ないし3のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項5】 前記酸化防止剤は、ヒドラジン化合物である請求項1ないし3のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項6】 希土類ボンド磁石中の前記希土類磁石粉末の含有量が95～99.5wt%である請求項1ないし5のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項7】 空孔率が5vol%以下である請求項1ないし6のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項8】 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素とCoを主とする遷移金属とを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項9】 前記希土類磁石粉末は、R（ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種）と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項10】 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項11】 前記希土類磁石粉末は、請求項7、8および9に記載の希土類磁石粉末のうちの少なくとも2種を混合したものである請求項1ないし7のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項12】 無磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積（BH）_{max}が4MGOe以上である請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項13】 磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積（BH）_{max}が10MGOe以上である請求項1ないし11のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【請求項14】 希土類磁石粉末と、ポリブチレンテレフタレート（PBT）またはこれを主とする熱可塑性樹脂

で構成される結合樹脂と、酸化防止剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項15】 希土類磁石粉末と、ポリブチレンテレフタレート（PBT）またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成される結合樹脂と、酸化防止剤とを、前記結合樹脂が少なくとも軟化または溶融する温度で混練してなることを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項16】 前記酸化防止剤は、キレート化合物を生成するキレート化剤である請求項14または15のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項17】 前記酸化防止剤は、ヒドラジン化合物である請求項14または15のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項18】 希土類ボンド磁石用組成物中の前記酸化防止剤の含有量は、0.1～2.0wt%である請求項14ないし17のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項19】 潤滑剤を含む請求項14ないし18のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項20】 前記潤滑剤は、ステアリン酸またはその金属塩である請求項19に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項21】 希土類ボンド磁石用組成物中の前記潤滑剤の含有量は、0.01～0.5wt%である請求項19または20に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【請求項22】 希土類ボンド磁石用組成物中の前記希土類磁石粉末の含有量は、94～99wt%である請求項14ないし21のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、希土類ボンド磁石および希土類ボンド磁石用組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】希土類ボンド磁石は、希土類磁石粉末と結合樹脂（有機バインダー）との混合物（コンパウンド）を所望の磁石形状に加圧成形して製造されるものであるが、その成形方法には、圧縮成形法、射出成形法および押出成形法が利用されている。

【0003】圧縮成形法は、前記コンパウンドをプレス金型中に充填し、これを圧縮成形して成形体を得その後、結合樹脂が熱硬化性樹脂の場合にはこれを加熱硬化させて磁石を製造する方法である。この方法は、他の方法に比べ、少ない結合樹脂量で成形ができるため、得られた磁石の磁粉量を多くすることができ、磁気特性の向上にとって有利である。

【0004】押出成形法は、加熱溶融された前記コンパウンドを押出成形機の金型から押出すとともに冷却固化し、所望の長さに切断して、磁石とする方法である。この方法では、磁石の形状に対する自由度が大きく、薄肉、長尺の磁石をも容易に製造できるという利点があるが、成形時における溶融物の流動性を確保するために、

結合樹脂の添加量を圧縮成形法のそれに比べて多くする必要があり、従って、得られた磁石中の磁粉量が少なく、磁気特性が低下する傾向がある。

【0005】射出成形法は、前記コンパウンドを加熱溶解し、十分な流動性を持たせた状態で該溶解物を金型内に注入し、所定の磁石形状に成形する方法である。この方法では、磁石の形状に対する自由度は、押出成形法に比べさらに大きく、特に、異形状の磁石をも容易に製造できるという利点がある。しかし、成形時における溶解物の流動性は、前記押出成形法より高いレベルが要求されるので、結合樹脂の添加量は、押出成形法のそれに比べてさらに多くする必要があり、従って、得られた磁石中の磁粉量が少なく、磁気特性がさらに低下する傾向となる。

【0006】ところで、希土類ボンド磁石に用いられる結合樹脂は、熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂とに大別されるが、空孔率の増大を抑制し、高機械的強度を確保するのに有利である点では、熱可塑性樹脂が優れている。従来、結合樹脂として用いられる熱可塑性樹脂の代表例としては、ナイロンが挙げられる。

【0007】また、近年では、希土類ボンド磁石に対し、高い寸法安定性、耐熱性が要求されるようになってきたが、前記ナイロンは、吸水性を有するために成形後のボンド磁石の寸法変化が大きく、また、融点が低く耐熱性の劣るので、これらの要求を十分に満足することができない。

【0008】そこで、ボンド磁石の結合樹脂として、ポリブチレンテレフタレート(PBT)を用いることが提案されている(特開昭62-123702号公報)。このPBTを用いることにより、寸法安定性、耐熱性が向上する。

【0009】しかしながら、PBTは、融点が224℃と高いため、ボンド磁石への成形過程で、希土類磁石粉末が高温に長時間さらされることとなり、希土類磁石粉末の酸化、劣化による磁気特性の低下が生じるという問題がある。

【0010】また、PBTは、前記各成形法のうち射出成形法にしか適用することができず(特開昭62-123702号公報第2頁右下欄第5行参照)、希土類磁石粉末の特性を生かした高磁気特性の希土類ボンド磁石を得ることができなかった。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、耐熱性、寸法安定性に優れ、高い磁気特性を持つ希土類ボンド磁石およびこのような磁石を得ることができる希土類ボンド磁石用組成物を提供することにある。

【0012】

【発明を解決するための手段】このような目的は、下記(1)～(22)の本発明により達成される。

【0013】(1) 希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物を用い、

圧縮成形により製造された希土類ボンド磁石であって、前記結合樹脂は、ポリブチレンテレフタレート(PBT)またこれを主とする熱可塑性樹脂で構成されていることを特徴とする希土類ボンド磁石。

【0014】(2) 希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤と、潤滑剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物を用い、圧縮成形により製造された希土類ボンド磁石であって、前記結合樹脂は、ポリブチレンテレフタレート(PBT)またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成されていることを特徴とする希土類ボンド磁石。

【0015】(3) 前記潤滑剤は、ステアリン酸またはその金属塩である上記(2)に記載の希土類ボンド磁石。

【0016】(4) 前記酸化防止剤は、キレート化合物を生成するキレート化剤である上記(1)ないし(3)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0017】(5) 前記酸化防止剤は、ヒドラジン化合物である上記(1)ないし(3)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0018】(6) 希土類ボンド磁石中の前記希土類磁石粉末の含有量が95～99.5wt%である上記(1)ないし(5)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0019】(7) 空孔率が5vol%以下である上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0020】(8) 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素とCoを主とする遷移金属とを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0021】(9) 前記希土類磁石粉末は、R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0022】(10) 前記希土類磁石粉末は、Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0023】(11) 前記希土類磁石粉末は、上記(7)、(8)および(9)に記載の希土類磁石粉末のうちの少なくとも2種を混合したものである上記(1)ないし(7)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0024】(12) 無磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)maxが4MG0e以上である上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0025】(13) 磁場中で成形された場合の磁気エネルギー積(BH)maxが10MG0e以上である上記(1)ないし(11)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石。

【0026】(14) 希土類磁石粉末と、ポリブチレン

テレフタレート (PBT) またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成される結合樹脂と、酸化防止剤とを含む希土類ボンド磁石用組成物。

【0027】(15) 希土類磁石粉末と、ポリブチレンテレフタレート (PBT) またはこれを主とする熱可塑性樹脂で構成される結合樹脂と、酸化防止剤とを、前記結合樹脂が少なくとも軟化または溶融する温度で混練してなることを特徴とする希土類ボンド磁石用組成物。

【0028】(16) 前記酸化防止剤は、キレート化合物を生成するキレート化剤である上記(14)または(15)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0029】(17) 前記酸化防止剤は、ヒドラジン化合物である上記(14)または(15)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0030】(18) 希土類ボンド磁石用組成物中の前記酸化防止剤の含有量は、0.1~2.0wt%である上記(14)ないし(17)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0031】(19) 潤滑剤を含む上記(14)ないし(18)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0032】(20) 前記潤滑剤は、ステアリン酸またはその金属塩である上記(19)に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0033】(21) 希土類ボンド磁石用組成物中の前記潤滑剤の含有量は、0.01~0.5wt%である上記(19)または(20)に記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0034】(22) 希土類ボンド磁石用組成物中の前記希土類磁石粉末の含有量は、94~99wt%である上記(14)ないし(21)のいずれかに記載の希土類ボンド磁石用組成物。

【0035】

【発明の実施の形態】以下、本発明の希土類ボンド磁石および希土類ボンド磁石用組成物について詳細に説明する。

【0036】まず、本発明の希土類ボンド磁石について説明する。

【0037】本発明の希土類ボンド磁石は、圧縮成形法で作成、好ましくは結合樹脂が軟化する程度に温度を上げて行われる温間圧縮成形により製造されたものである。

【0038】本発明の希土類ボンド磁石は、以下のような希土類磁石粉末と結合樹脂と、酸化防止剤とを含む。さらに、以下のような潤滑剤を含むのが好ましい。

【0039】1. 希土類磁石粉末

希土類磁石粉末としては、希土類元素と遷移金属とを含む合金よりなるものが好ましく、特に、次の[1]~[4]が好ましい。

【0040】[1] Smを主とする希土類元素と、Coを主とする遷移金属とを基本成分とするもの(以下、Sm-Co系合金と言う)。

【0041】[2] R(ただし、RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)と、Feを主とする遷移金属と、Bとを基本成分とするもの(以下、R-Fe-B系合金と言う)。

【0042】[3] Smを主とする希土類元素と、Feを主とする遷移金属と、Nを主とする格子間元素とを基本成分とするもの(以下、Sm-Fe-N系合金と言う)。

【0043】[4] 前記[1]~[3]の組成のもののうち、少なくとも2種類を混合したもの。この場合、混合する各磁石粉末の利点を併有することができ、より優れた磁気特性を容易に得ることができる。

【0044】Sm-Co系合金の代表的なものとしては、SmCo₅、(Sm_{0.42}Pr_{0.58})Co₅、Sm(Co_{0.76}Fe_{0.10}Cu_{0.14})₇、Sm₂(Co,Cu,Fe,M)₁₇(M=Ti,Zr,Hf)が挙げられる。

【0045】R-Fe-B系合金の代表的なものとしては、Nd-Fe-B系合金、Pr-Fe-B系合金、Nd-Pr-Fe-B系合金、これらの希土類元素の一部をDyやTbなどの重希土類元素で置換したもの、また、Feの一部をCo、Ni等の他の遷移金属で置換したもの等が挙げられる。またこれらの合金を水素処理し、脱水素したものも使用できる。

【0046】Sm-Fe-N系合金の代表的なものとしては、Sm₂Fe₁₇合金を窒化して作製したSm₂Fe₁₇N₃が挙げられる。

【0047】磁石粉末における前記希土類元素としては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luが、また混合希土類として、ミッシュメタルやジジム、さらに前記希土類元素や混合希土類を1種または2種以上含むことができる。また、前記遷移金属としては、Fe、Co、Ni、Cu、V、Ti、Zr、Mo、Hf等が挙げられ、これらを1種または2種以上含むことができる。また、磁気特性を向上させるために磁石粉末中には、必要に応じて、Al、C、Ga、Si、Ag、Au、Pt、Zn、Sn等を含有することもできる。

【0048】また、磁石粉末の平均粒径は、特に限定されないが、0.5~500μm程度が好ましく、1~100μm程度がより好ましい。また、後述するような少量の結合樹脂で成形時の良好な成形性、高い密度と高い磁気性能を得るために、磁石粉末の粒径分布は、ある程度ブロードであることが好ましい。これにより、得られたボンド磁石の空孔率を低減することもできる。なお、前記[4]の場合、混合する磁石粉末の組成毎に、その平均粒径が異なってもよい。

【0049】磁石粉末の製造方法は、特に限定されず、例えば、溶解・鋳造により合金インゴットを作製し、この合金インゴットを適度な大きさに粉砕し(さらに分級し)て得られたもの、アモルファス合金を製造するのに用いる急冷薄帯製造装置で、リボン状の急冷薄帯(微細な多結晶が集合)を製造し、この薄帯を適度な粒度に粉砕・分級して得られたもの等、いずれでもよい。

【0050】以上のような磁石粉末の希土類ボンド磁石

中での含有量は、95～99.5wt%程度であるのが好ましく、96～99wt%程度であるのがより好ましい。

【0051】磁石粉末の含有量が少な過ぎると、磁気特性（特に磁気エネルギー積）の向上が図れず、また、磁石粉末の含有量が多過ぎると、相対的に結合樹脂の含有量が少なくなり、成形性、機械的強度が低下する。

【0052】2. 結合樹脂（バインダー）

結合樹脂（バインダー）としては、PBTまたはこれを主とする熱可塑性樹脂が用いられる。これにより、優れた耐熱性、寸法安定性が得られる。

【0053】PBTを主とする熱可塑性樹脂としては、PBTと他の熱可塑性樹脂との共重合体、ポリマーブレンド、ポリマーアロイ等が挙げられる。この場合、他の熱可塑性樹脂としては、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリカーボネート等のPBT以外のポリエステル、ナイロンに代表されるポリアミド、ポリアセタールやポリフェニレンエーテル等のポリエーテル、熱可塑性ポリイミド、芳香族ポリエステル系樹脂等の液晶ポリマー、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエチレンやポリプロピレン等のポリオレフィン、変性ポリオレフィン、ABS樹脂等のスチレン系樹脂等のうちの1種または2種以上が挙げられる。これらのうちでも特に、PBTと似ているもの、相溶性が優れるものが好ましい。

【0054】このような他の熱可塑性樹脂は、種々の目的で用いられ、例えば、耐熱性、成形性の向上や結合樹脂の触点（軟化点）を調整するために用いられる。

【0055】このような他の熱可塑性樹脂の含有量は、PBTの特性を阻害しない程度の量であれば許容され、通常は、結合樹脂中50wt%未満とされる。

【0056】3. 酸化防止剤

酸化防止剤は、後述する希土類ボンド磁石用組成物の製造の際等に、希土類磁石粉末自身の酸化、劣化、変質や、希土類磁石粉末が触媒として働くことにより生じる結合樹脂の酸化、劣化、変質を防止するために該組成物中に添加される添加剤である。この酸化防止剤の添加は、希土類磁石粉末の酸化を防止し、磁石の磁気特性の向上を図るのに寄与するとともに、希土類ボンド磁石用組成物の混練時、成形時における熱的安定性の向上に寄与し、少ない結合樹脂量で良好な成形性を確保する上で重要な役割を果たしている。

【0057】この酸化防止剤は、希土類ボンド磁石用組成物の混練時や成形時等の中間工程において揮発したり、変質したりするので、製造された希土類ボンド磁石中には、その一部が残留した状態で存在している。従って、希土類ボンド磁石中の酸化防止剤の含有量は、希土類ボンド磁石用組成物中の酸化防止剤の添加量に対し、例えば10～95%程度、特に20～90%程度となる。

【0058】酸化防止剤としては、希土類磁石粉末等の酸化を防止または抑制し得るものであればいかなるもの

でもよく、例えば、トコフェロール、アミン系化合物、アミノ酸系化合物、ニトロカルボン酸類、ヒドラジン化合物、シアン化合物、硫化物等の金属イオン特にFe成分に対しキレート化合物を生成するキレート化剤が好適に使用されるが、このなかでも特に、ヒドラジン化合物が好ましい。

【0059】なお、酸化防止剤の種類、組成等については、これらのものに限定されないことは言うまでもない。

10 【0060】4. 潤滑剤

潤滑剤は、希土類ボンド磁石の混練時や成形時に材料の流動性を向上させる機能を有する。従って、潤滑剤を添加することで、混練時のモータへの負荷低減や成形時により低い成形圧で高い密度を得ることが可能となり、混練機、成形機のコストダウンや長寿命化に寄与する。

【0061】この潤滑剤は、希土類ボンド磁石用組成物の混練時や成形時等の中間工程において揮発したり、変質したりするので、製造された希土類ボンド磁石中にはその一部が残留した状態で存在している。従って、希土類ボンド磁石中の潤滑剤の含有量は、希土類ボンド磁石用組成物中の潤滑剤の添加量に対し、例えば、10～90%程度、特に20～80%程度となる。

【0062】潤滑剤としては、例えば、ステアリン酸またはその金属塩、脂肪酸、シリコンオイル、各種ワックス、グラファイト、二硫化モリブデン等の潤滑剤が挙げられるが、そのなかでも、特に潤滑作用に優れることから、ステアリン酸またはその金属塩が好ましい。ステアリン酸塩としては、例えば、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム等が挙げられる。

30 【0063】本発明の希土類ボンド磁石において、空孔率（ボンド磁石中に含まれる空孔が占める体積割合）は、5vol%以下であるのが好ましく、3.5vol%以下であるのがより好ましく、2.4vol%以下であるのがさらに好ましい。空孔率が高いと、磁石粉末の組成、結合樹脂の組成、含有量等の他の条件によっては、磁石の機械的強度および耐食性、耐溶剤性が低下し、使用条件によっては磁気特性を低下させるおそれがある。

【0064】以上のような本発明の希土類ボンド磁石は、磁石粉末の組成、磁石粉末の含有量の多さ等から、等方性磁石であっても、優れた磁気特性を有する。

40 【0065】すなわち、本発明の希土類ボンド磁石は、無磁場中で成形されたものの場合、磁気エネルギー積（BX）maxが4MG0e以上であるのが好ましく、7MG0e以上であるのがより好ましい。また、磁場中で成形されたものの場合磁気エネルギー積（BH）maxが10MG0e以上であるのが好ましく、12MG0e以上であるのがより好ましい。

50 【0066】なお、本発明の希土類ボンド磁石の形状、寸法等は特に限定されず、例えば、形状に関しては、例えば、円柱状、角柱状、円筒状（リング状）、円弧状、平板状、湾曲板状等のあらゆる形状のものが可能であ

り、その大きさも、大型のものから超小型のものまであらゆる大きさのものが可能である。

【0067】次に、本発明の希土類ボンド磁石用組成物について説明する。

【0068】本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、主に、前述した希土類磁石粉末と、前述した結合樹脂と、前述した酸化防止剤とで構成される。

【0069】希土類ボンド磁石用組成物中の希土類磁石粉末の含有量は、94~99.5wt%であるのが好ましく、95~99wt%程度であるのがより好ましい。希土類磁石粉末の含有量が少な過ぎると、磁気特性(特に最大磁気エネルギー積)の向上が図れず、また、多過ぎると、混練性が悪くなるとともに、成形性が悪くなり、成形不良が生じたり、極端な場合には成形が困難または不能となる。

【0070】希土類ボンド磁石用組成物中の酸化防止剤の含有量(添加量)は、0.1~2.0wt%程度とするのが好ましく、0.3~1.8wt%程度とするのがより好ましい。この場合、酸化防止剤の含有量は、結合樹脂の量に対し5~120%程度であるのが好ましく、15~90%程度であるのがより好ましい。

【0071】酸化防止剤の含有量が少な過ぎると、酸化防止効果が少なく、磁石粉末の含有量が多い場合等に磁石粉末等の酸化を十分に抑制することができなくなる。また、酸化防止剤の含有量が多過ぎると、相対的に結合樹脂量が減少し、成形体の機械的強度が低下する傾向を示す。

【0072】また、希土類ボンド磁石用組成物には、必要に応じ、前述したような潤滑剤を添加することができる。また、その他に、例えば、成形助剤、安定化剤等の各種添加剤を添加することもできる。

【0073】希土類ボンド磁石用組成物中に潤滑剤を添加する場合、その含有量(添加量)は、0.01~0.7wt%程度であるのが好ましく、0.02~0.5wt%程度であるのがより好ましい。潤滑剤の含有量が少な過ぎると、潤滑作用が十分に発揮されず、また、潤滑剤の含有量が多過ぎると、成形体の機械的強度の低下を招く。

【0074】なお、本発明では、潤滑剤の添加量は、前記範囲の下限値以下であってもよく、また、無添加であってもよいことは言うまでもない。

【0075】本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、前述した希土類磁石粉末と、結合樹脂と、酸化防止剤と、必要に応じて添加される潤滑剤との混合物またはそれを混練してなるもの(混練物)である。混合物の混練は、例えば単独のまたは成形機に付属の混練機等を用いて十分になされる。混練機は特に限定されず、所望の温度と混練が与えられれば、バッチ式のもの連続式のものどちらでもよい。

【0076】混合物の混練は用いる結合樹脂が少なくとも軟化または溶融する温度で、好ましくは溶融する温度で行われる。具体的には、200~320℃程度が好ましく、

220~290℃程度がより好ましい。このような温度で混練することにより、混練の効率が向上し、常温で混練する場合に比べてより短時間で均一に混練することができるとともに、結合樹脂の粘度が下がった状態で混練されるので、希土類磁石粉末の周囲を結合樹脂が覆うような状態となり、希土類ボンド磁石用組成物中およびそれより製造されたボンド磁石中の空孔率の減少に寄与する。

【0077】また、混練物の平均滞留時間は、1~30分程度が好ましく、2~20分程度がより好ましい。ここで、混練物の平均滞留時間とは、混練物の混練機内滞留量を平均流速で除した値である。この平均滞留時間が短か過ぎると、混練不十分となり、また長過ぎると、機械的ダメージや、混練物の酸化、劣化、変質が進み、成形体で高い密度が得られず、磁気特性の向上が得られなくなる。

【0078】混練の雰囲気は、大気中でもできるが、例えば、真空または減圧状態下(例えば1Pa~0.1MPa)、あるいは窒素ガス、アルゴンガス等の不活性ガス中のような非酸化性雰囲気が好ましい。

【0079】そして、混練の後は、常温程度まで冷却されるのが好ましい。この冷却は、混練と連続して行われるのが好ましい。

【0080】このような混練物の冷却における冷却速度は、その雰囲気にもより、非酸化性雰囲気では比較的ゆっくりでもよいが、磁粉の表面にコートされた樹脂が速やかに固化される様、できるだけ速やかに冷却するのが好ましい。その速度は特に限定されないが、10℃/sec以上程度であるのが好ましく、50℃/sec程度以上であるのがより好ましい。

【0081】また、本発明の希土類ボンド磁石用組成物は、さらに混練物を粉砕して粉体としたものや混練から直接造粒しその後冷却したものであってもよい。

【0082】本発明の希土類ボンド磁石は、前記希土類ボンド磁石用組成物を用い、例えば次のようにして製造される。

【0083】希土類ボンド磁石用組成物を圧縮成形機の金型内に所望量充填し、磁場中(配向磁場が例えば5~20kOe、配向方向は、縦、横、ラジアル方向のいずれも可)または、無磁場中で圧縮成形する。

【0084】この圧縮成形は、冷間成形(常温付近での成形)、温間成形のいずれでもよいが、好ましくは温間成形とされる。すなわち、成形金型を加熱する等により、成形時の材料温度が用いる結合樹脂の軟化温度以上の温度となるようにして、圧縮成形を行う。具体的には、成形時の材料温度は、好ましくは200~320℃程度、より好ましくは230~300℃程度とされる。

【0085】この加熱方法は、特に限定されないが、バーナー加熱、電気抵抗加熱、高周波加熱、赤外線照射、プラズマ照射等が用いられる。これらの方法は、成形機により適宜選択される。

【0086】このような温間成形とすることにより、金型内での成形材料の流動性が向上し、低い成形圧で、寸法精度のよい成形をすることができる。すなわち、好ましくは500MPa以下、より好ましくは350MPa以下の成形圧で成形（賦形）することができ、成形が容易となるとともに、リング状、平板状、湾曲板状等の薄肉部を有する形状のものや長尺なものでも、良好かつ安定した形状、寸法のことを量産することができる。

【0087】また、温間成形とすることにより、前述したような低い成形圧でも、得られた磁石の空孔率を前述したように低くすることができる。

【0088】さらに、磁場中成形においては、温間成形とすることにより金型内での成形材料の流動性が向上し、外部磁場による磁粉の回転が容易になり、磁気配向性が向上するとともに、温度上昇により希土類磁石粉末の保磁力が低下し、見かけ上高い磁場をかけたものとなるので、所望の方向に配向しやすくなり、磁気特性を向上することができる。

【0089】以上のようにして成形された成形体を、冷却後、離型し、本発明の希土類ボンド磁石を得る。

【0090】なお、前述した希土類ボンド磁石用組成物は、圧縮成形以外の成形法に用いることもできる。

【0091】

【実施例】以下、本発明の具体的実施例について説明する。

【0092】（実施例1～14、比較例1～4）下記組成①、②、③、④、⑤の5種の希土類磁石粉末（磁粉）と、下記A、B、C、Dの4種の結合樹脂と、a、bの2種の酸化防止剤と、2種の潤滑剤I、IIとを用意し、これらを下記表1および表2に示す所定の組み合わせで混合した。

【0093】次に、この混合物をスクリュース式2軸押出し混練機（同方向回転、φ15）を用いて十分に混練した後、冷却速度55℃/secで常温まで冷却し、希土類ボンド磁石用組成物を得た。このときの混練条件は、下記表1および表2に示す通りである。

【0094】また、得られたコンパウンド中の磁粉、結合樹脂、酸化防止剤等の量は、表1および表2に示す通りである。

【0095】・希土類磁石粉末

- ①急冷Nd₁₁Pr₁Fe_{b1}Co₅B₆粉末（平均粒径=175μm）
- ②急冷Nd₁₂Fe_{b1}Co₃Nb₂B₆粉末（平均粒径=180μm）
- ③Sm（Co_{0.604}Cu_{0.06}Fe_{0.82}Zr_{0.018}）_{8.3}粉末（平均粒径=10μm）
- ④Sm₂Fe₁₇N₃粉末（平均粒径=3μm）
- ⑤HDDR法による異方性Nd₁₈Fe_{b1}Co₁₁Ga₁B₈粉末（平均粒径=10μm）

・結合樹脂

- A. PBT樹脂（融点224℃）
- B. PBT-PETポリマーアロイ（重量比7：3）
- C. PBTとナイロン12のポリマーブレンド（重量比8：2）

D. ナイロン12（融点178℃）

・酸化防止剤

a. ヒドラジン化合物（日本チバガイギー社製、商品名：イルガノックスMD1024）

b. トコフェロール

・潤滑剤

I. ステアリン酸

II. ステアリン酸亜鉛

次に、前記磁石用組成物を500μmアンダーに粉砕、篩い分けし、粒状体とし、この粒状体を金型内に充填し、プレス成形機により圧縮成形して、希土類ボンド磁石を製造した。このときの成形条件を下記表1および表2にあわせて示す。なお、磁場中成形は、ボンド磁石の加圧方向と同じ方向の縦磁場を印加した。

【0096】得られたボンド磁石の形状は、円柱状であり、その寸法（設計寸法）は、外径10mm、高さ約7mmであった。

【0097】得られたボンド磁石の組成、諸特性を下記表3および表4に示す。なお、表3および表4中の各特性の評価方法は、次の通りである。

【0098】・最大エネルギー積

最大エネルギー積は、高さ方向に着磁し、東英工業社製DC Recording Fluxmeter TRF5BHを用いてBHカーブを測定し、求めた。

【0099】・密度

密度は、水中アルキメデス法により測定した。

【0100】・空孔率

空孔率は、各成分の密度と混合比率から計算される計算密度と上記実測の密度の差から次の計算式で求めた。

【0101】空孔率=1-（実密度/計算密度）

・機械的強度

機械的強度は、得られたボンド磁石から高さ3mmの試験片を切り出し、この試験片を用いせん断打ち抜き法（日本電子材料工業会標準規格EMAS7006）により評価した。

【0102】・耐熱性

耐熱性は、得られた希土類ボンド磁石を着磁後、高温下（180℃、100時間）に置き、試験の前後の総フラックスの変化を測定した。また、外径、高さの寸法の変化を測定し、それらが小さいものから◎、○、△、×の4段階で評価した。

【0103】・形状安定性

形状安定性は、得られた希土類ボンド磁石を高温、高湿環境下（80℃、90%RH）に100時間置き、外径、高さの寸法変化（10点測定）の割合を測定し、それが小さいものから、◎、○、△、×の4段階で評価した。

【0104】・耐食性

耐食性は、得られた希土類ボンド磁石に対し、恒温恒湿槽により60℃、95%RHの条件で加速試験を行い、錆の発生までの時間を測定し、この時間が長いものから、◎、○、△、×の4段階で評価した。

【0105】

* * 【表1】

組成 [wt%]	磁 粉	磁 粉 量	樹 脂	樹 脂 量	酸 化 防 止 劑	酸 化 防 止 劑 量	潤 滑 劑	潤 滑 劑 量	混 練 溫 度 [°C]	平 均 滯 留 時 間 [分]	成 形 溫 度 [°C]	成 形 壓 力 [MPa]	印 加 磁 場 [kOe]
實施例 1	①	96.0	A	2.9	a	1.1	—	—	260	12	260	490	—
實施例 2	①	97.0	A	2.5	a	0.5	—	—	260	15	260	490	—
實施例 3	②	98.0	A	1.4	a	0.6	—	—	260	18	260	490	—
實施例 4	②	96.5	B	3.5	b	1.0	—	—	270	13	270	490	—
實施例 5	③	98.0	C	1.5	b	0.5	—	—	240	15	240	490	17
實施例 6	①	96.0	A	2.8	a	1.1	Ⅱ	0.1	260	3	260	195	—
實施例 7	③ ⑤	67.0 29.0	A	2.3	a	1.6	I	0.1	260	12	260	195	17
實施例 8	③ ④	83.5 12.0	A	3.5	b	0.9	I	0.1	260	13	260	195	17
實施例 9	④ ⑤	48.5 48.5	B	2.2	a	0.7	Ⅱ	0.1	270	14	270	195	15

【0106】

※ ※ 【表2】

組成 [wt%]	磁 粉	磁 粉 量	樹 脂	樹 脂 量	酸 化 防 止 劑	酸 化 防 止 劑 量	潤 滑 劑	潤 滑 劑 量	混 練 溫 度 [°C]	平 均 滯 留 時 間 [分]	成 形 溫 度 [°C]	成 形 壓 力 [MPa]	印 加 磁 場 [kOe]
實施例 10	⑤	95.7	A	3.5	a	0.7	Ⅱ	0.1	260	10	260	195	15
實施例 11	④	98.5	C	1.0	b	0.3	I	0.2	240	8	240	195	13
實施例 12	① ②	61.1 35.0	A	2.8	a	1.0	Ⅱ	0.1	260	6	260	195	—
實施例 13	⑤	98.0	C	1.2	a	0.6	I	0.2	240	5	240	195	15
實施例 14	②	95.5	A	3.5	a	0.8	I	0.2	260	3	260	195	—
比較例 1	①	93.0	A	7.0	—	—	—	—	260	13	260	490	—
比較例 2	①	97.0	A	3.0	—	—	—	—	260	21	260	490	—
比較例 3	①	96.0	D	3.5	a	0.5	—	—	210	4	210	290	—
比較例 4	①	96.0	D	2.8	a	1.2	—	—	210	7	210	290	—

【0107】

★ ★ 【表3】

15

16

組成 [wt%]	磁 粉	磁 粉 量	酸 化 防 止 剤	酸 化 防 止 剤 量	潤 滑 剤	潤 滑 剤 量	磁気エネ ルギー積 [MGOe]	密度 [g/cm ³]	空 孔 率 [%]	機械的 強度 [MPa]	耐 熱 性	形 状 安 定 性	耐 食 性
実施例1	①	96.1	a	1.0	—	—	10.6	6.24	0.7	87	◎	○	◎
実施例2	①	97.1	a	0.4	—	—	10.3	6.48	1.5	84	◎	○	○
実施例3	②	98.1	a	0.5	—	—	9.2	6.70	2.2	79	○	○	○
実施例4	②	95.6	b	0.9	—	—	9.3	6.10	1.0	90	◎	○	◎
実施例5	③	98.1	b	0.4	—	—	18.0	7.51	1.4	82	○	○	○
実施例6	①	96.1	a	1.0	Ⅱ	0.05	11.0	6.22	0.8	86	◎	◎	◎
実施例7	③ ⑤	67.1 29.0	a	1.4	I	0.04	21.0	7.07	1.4	72	◎	○	○
実施例8	③ ④	83.6 12.0	b	0.8	I	0.04	20.2	7.30	2.4	75	○	○	○
実施例9	④ ⑤	48.6 48.5	a	0.6	Ⅱ	0.04	19.9	6.95	1.8	74	○	○	○

【0108】

* * 【表4】

組成 [wt%]	磁 粉	磁 粉 量	酸 化 防 止 剤	酸 化 防 止 剤 量	潤 滑 剤	潤 滑 剤 量	磁気エネ ルギー積 [MGOe]	密度 [g/cm ³]	空 孔 率 [%]	機械的 強度 [MPa]	耐 熱 性	形 状 安 定 性	耐 食 性
実施例10	⑤	95.8	a	0.6	Ⅱ	0.06	19.1	6.10	1.0	86	◎	◎	◎
実施例11	④	98.6	b	0.2	I	0.09	16.3	5.80	2.3	74	○	○	○
実施例12	① ②	61.2 35.0	a	0.9	Ⅱ	0.06	9.2	6.23	1.1	88	◎	○	○
実施例13	⑤	98.1	a	0.5	I	0.10	17.2	6.61	2.0	87	○	◎	○
実施例14	②	95.6	a	0.7	I	0.08	9.0	6.10	1.0	86	◎	◎	○
比較例1	①	93.0	—	—	—	—	6.5	5.43	4.1	61	×	×	×
比較例2	①	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較例3	①	96.1	a	0.4	—	—	9.0	5.88	1.7	85	×	×	△
比較例4	①	96.1	a	1.1	—	—	10.0	6.01	0.6	86	×	×	△

【0109】各表に示すように、実施例1～14の希土類ボンド磁石は、いずれも、空孔率が低く、機械的強度が高いものであり、しかも、磁気特性（最大磁気エネルギー積）、耐熱性、形状安定性、耐食性に優れていた。そして、結合樹脂の含有量が少ないにもかかわらず、成形性が良好であった。

【0110】特に、潤滑剤を含む実施例6～14では、より低い成形圧（350MPa以下）でこのような優れた特性の希土類ボンド磁石が得られた。

【0111】これに対し、比較例1の希土類ボンド磁石は、酸化防止剤の添加がなく、磁粉の含有量が少ないため、磁気特性、密度が劣っている。

【0112】また、比較例1に比べて磁粉の含有量を増やした比較例2では、一部崩壊等の成形不良が生じ、実 ※

※用性のあるボンド磁石が得られなかった。

【0113】また、比較例3、4の希土類ボンド磁石は、用いた結合樹脂の性質上、耐熱性、形状安定性が劣り、また、耐食性も劣るものであった。

【0114】

【発明の効果】以上述べたように、本発明によれば、少ない結合樹脂量でも成形性に優れており、また、空孔率が低く、高機械的強度で、磁気特性に優れ、しかも、耐熱性、形状安定性、耐食性が優れる希土類ボンド磁石を提供することができる。

【0115】また、圧縮成形により製造する場合、低い成形圧で、このような特性の磁石を得ることができ、製造が容易である。特に、潤滑剤を含む場合には、この効果がより顕著となる。